



Docket No.: 50002-01

**PATENT**

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re Application of	:	Customer Number: 20277
Shigeru SAKAMOTO, et al.	:	Confirmation Number: 4842
Serial No.: 10/722,122	:	Group Art Unit: 1745
Filed: November 26, 2003	:	Examiner:
For: FUEL CELL	:	

**TRANSMITTAL OF CERTIFIED PRIORITY DOCUMENTS**

Mail Stop Missing Parts  
Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

At the time the above application was filed, priority was claimed based on the following applications:

**Japanese Patent Application No. 2002-346298, filed November 28, 2002**  
**and**  
**Japanese Patent Application No. 2002-350543, filed December 2, 2002**

A copy of each priority application listed above is enclosed.

Respectfully submitted,

MCDERMOTT, WILL & EMERY

Stephen A. Becker  
Registration No. 26,527

600 13<sup>th</sup> Street, N.W.  
Washington, DC 20005-3096  
(202) 756-8000 SAB:prg  
Facsimile: (202) 756-8087  
**Date: April 23, 2004**

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

50002-018  
Sakamoto et al.  
Nov. 26, 2003  
10/722,122

McDermott, Will & Emery

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2002年11月28日

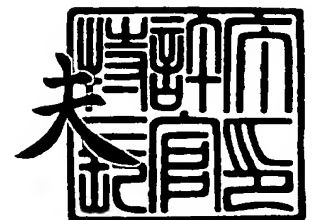
出 願 番 号  
Application Number: 特願2002-346298  
[ST. 10/C]: [JP2002-346298]

出 願 人  
Applicant(s): 三洋電機株式会社

2003年10月31日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 NRG1020057

【提出日】 平成14年11月28日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三洋電機株式会社  
社内

    【氏名】 生駒 吉弘

【特許出願人】

    【識別番号】 000001889

    【氏名又は名称】 三洋電機株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100062225

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 秋元 輝雄

    【電話番号】 03-3475-1501

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 001580

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 図面 1

    【物件名】 要約書 1

    【包括委任状番号】 9004600

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用電極

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 電解質膜の両面に燃料極側触媒層および空気極側触媒層を配置し、さらに燃料極側触媒層および空気極側触媒層の外面にそれぞれガス拡散層を配置し、さらにガス拡散層の外面に前記ガス拡散層に面して反応ガス流通用ガス流路を形成する複数の凹部と凸部を備えた一組みのセパレータを配置し、前記一組みのセパレータの前記凸部間で前記電解質膜と前記触媒層と前記ガス拡散層とを締め付けて挟持した燃料電池用電極において、

挟持する前の前記ガス拡散層の厚み  $D_1$  が、挟持後に  $D_1 \times 0.9 = D_2$  以下となるように締め付けて挟持したことを特徴とする燃料電池用電極。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料電池用電極に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

図 3 は、従来の燃料電池の 1 形態である固体高分子形燃料電池の電極（単セル）の基本構成を示す分解断面図である。固体高分子電解質膜 1 の両側の主面にそれぞれ貴金属（主として白金）を含む空気極（カソード）側触媒層 2 および燃料極（アノード）側触媒層 3 を接合してあり、空気極側触媒層 2 および燃料極側触媒層 3 と対向して、それぞれ空気極側ガス拡散層 4 および燃料極側ガス拡散層 5 が配置される。これによりそれぞれ空気極 6 および燃料極 7 が構成される。これらのガス拡散層 4 および 5 は、それぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを通過させると同時に、電流を外部に伝える働きをする。そして、ガス拡散層 4、5 の外面にガス拡散層 4、5 に面して反応ガス流通用ガス流路 8 を形成する複数の凹部と凸部 20 を備え、相對する主面に冷却水流通用の冷却水流路 9 を備えた導電性でかつガス不透過性の材料よりなる一組みのセパレータ 10 を配置し、前記凸部 20 間で前記電解質膜 1 と前記触媒層 2、3 と前記ガス拡散層 4、5 とを締め付けて

挟持して燃料電池用電極 11（燃料電池単セル）が構成されている。

### 【0003】

図4は、固体高分子形燃料電池スタックの基本構成を示す断面図である。多数の燃料電池用電極 11（燃料電池単セル）を積層し、集電板 12、電気絶縁と熱絶縁を目的とする絶縁板 13 ならびに荷重を加えて積層状態を保持するための締付板 14 によって挟持し、ボルト 15 とナット 17 により締め付けられており、締め付け荷重は、皿バネ 16 により加えられている。

### 【0004】

固体高分子電解質膜 1 は分子中にプロトン交換基を有しており、含水量を飽和させると比抵抗が常温で  $20 \Omega \text{ cm}^2$  以下となり、プロトン導電性電解質として機能する。このように固体高分子電解質膜 1 は含水させることによりプロトン導電性電解質として機能するもので、固体高分子形燃料電池においては、反応ガスに水蒸気を飽和に含ませて各燃料電池用電極 11（燃料電池単セル）に供給して運転する方法が採られている。

### 【0005】

燃料極 7 に水素を含む燃料ガス、空気極 6 に酸素を含む酸化剤ガスを供給すると、燃料極 7 では、水素分子を水素イオンと電子に分解する燃料極反応、空気極 6 では、酸素と水素イオンと電子から水を生成する以下の電気化学反応がそれぞれ行われ、燃料極から空気極に向かって外部回路を移動する電子により電力が負荷に供給されるとともに、空気極側に水が生成されることとなる。

### 【0006】

燃料極；  $\text{H}_2 \rightarrow 2 \text{H}^+ + 2 \text{e}^-$ （燃料極反応）

空気極；  $2 \text{H}^+ + (1/2) \text{O}_2 + 2 \text{e}^- \rightarrow \text{H}_2 \text{O}$ （空気極反応）

全体；  $\text{H}_2 + (1/2) \text{O}_2 \rightarrow \text{H}_2 \text{O}$

### 【0007】

このように、空気極 6 側では反応により水が生成される上に、燃料極 7 側からの水素イオンの移動に伴って空気極 6 側に移動する水も存在する。

そのためガス拡散層 4 および 5 は、1) 反応ガス流通用ガス流路 8 を形成する複数の凹部より供給される反応ガスを触媒層 2、3 に均一に供給する、2) 電流

を外部に伝える、3) 触媒層 2、3 からの反応生成水および移動水の排出ならびに飽和水蒸気を含んだ反応ガスからの固体高分子電解質膜 1 および触媒層 2、3 への給水を良好にコントロールするなどの機能が要求される。

#### 【0 0 0 8】

そのため、従来は、ガス拡散層 4 および 5 としてカーボンペーパーや、カーボン織布、カーボン不織布および金属繊維からなる多孔質体などを含む導電性多孔性材料や、この導電性多孔性材料に撥水処理をした材料や、この導電性多孔性材料にカーボン粉末と撥水性充填剤からなる混合物を塗布した材料が使用されていた（例えば、特許文献 1 参照）。

#### 【0 0 0 9】

##### 【特許文献 1】

特開平 1 0 - 2 8 9 7 2 3 号公報

#### 【0 0 1 0】

##### 【発明が解決しようとする課題】

しかし、図 5 に示すように従来の燃料電池用電極 1 1（燃料電池単セル）は、ガス流路 8 内を流れる反応ガスの一部が白矢印で示したように、凸部 2 0 間で挟持されたガス拡散層 5 を経て隣のガス流路 8 にショートカットしてしまい、均一に反応ガスがガス流路 8 内を流れないという問題があった。反応ガスがガス流路 8 内を流れないと電極面内において十分に発電できない部分が生じ、規定の電力が得られないとともに、触媒層 2、3 から排出される反応生成水および移動水と反応ガスに含まれる飽和水蒸気が結露して生じる水滴がガス流路 8 内に溜って良好に排出できない。

本発明の目的は、従来の問題を解決し、反応ガスが凸部 2 0 間で挟持されたガス拡散層 5 を経て隣のガス流路 8 にショートカットして流れるのを防止し、電極面内において均一な反応を行わせて規定の電力が得られるようにするとともに、ガス流路 8 内に結露した水滴が万一溜っても良好に排出できる燃料電池用電極を提供することである。

#### 【0 0 1 1】

##### 【課題を解決するための手段】

課題を解決するための本発明の請求項 1 記載の燃料電池用電極は、電解質膜の両面に燃料極側触媒層および空気極側触媒層を配置し、さらに燃料極側触媒層および空気極側触媒層の外面にそれぞれガス拡散層を配置し、さらにガス拡散層の外面に前記ガス拡散層に面して反応ガス流通用ガス流路を形成する複数の凹部と凸部を備えた一組みのセパレータを配置し、前記一組みのセパレータの前記凸部間で前記電解質膜と前記触媒層と前記ガス拡散層とを締め付けて挟持した燃料電池用電極において、

挟持する前の前記ガス拡散層の厚み  $D_1$  が、挟持後に  $D_1 \times 0.9 = D_2$  以下となるように締め付けて挟持したことを特徴とする。

#### 【0012】

ガス拡散層を挟持する前の、すなわち締めつけ圧力をかけていない状態でのガス拡散層を厚みを  $D_1$  とし、締めつけ後のガス拡散層の厚さを  $D_2$  とすると、締めつけ圧力をかけて挟持後に  $D_2$  が  $D_1 \times 0.9$  以下となるようにすることにより、反応ガスが凸部間で挟持されたガス拡散層を経て隣のガス流路にショートカットして流れるのを防止できる。反応ガスのショートカットして流れるのを防止すると、電極面内において均一な反応を行わせて規定の電力が得られるようになり、かつ、ガス流路内に結露した水滴が万一溜っても反応ガスで吹き飛ばして良好に排出できる。

#### 【0013】

##### 【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態を図面を用いて説明する。

図 1 は本発明の燃料電池用電極の部分拡大断面説明図である。

図 1 に示すように本発明の燃料電池用電極 11A（燃料電池単セル）は、前記図 3 に示すように、固体高分子電解質膜 1 の両側の主面にそれぞれ空気極側触媒層 2 および燃料極側触媒層 3 を接合し、空気極側触媒層 2 および燃料極側触媒層 3 と対向して、それぞれ空気極側ガス拡散層 4 および燃料極側ガス拡散層 5 を配置し、そして、ガス拡散層 4、5 の外面に前記ガス拡散層 4、5 に面して反応ガス流通用ガス流路 8 を形成する複数の凹部と凸部 20 を備え、相對する主面に冷却水流通用の冷却水流路 9 を備えたセパレータ 10 を配置し、前記凸部 20 間で

前記電解質膜 1 と前記触媒層 2、3 と前記ガス拡散層 4、5 とを締め付けて挟持して構成されており、前記ガス拡散層 4、5 として、挟持する前の厚さ、すなわち締めつけ圧力をかけていない状態での厚み  $D_1$  を有するガス拡散層を用い、締めつけ圧力をかけて挟持後に  $D_2$  (締めつけ圧力をかけて締めつけ後のガス拡散層の厚さ) が  $D_1 \times 0.9$  以下となるように締め付けて挟持して構成する。

#### 【0014】

このように構成することにより反応ガスが凸部間で挟持されたガス拡散層を経て隣のガス流路にショートカットして流れるのを防止でき、電極面内において均一な反応を行わせて規定の電力が得られるようになり、かつガス流路内に結露した水滴が万一溜っても反応ガスで吹き飛ばして良好に排出できる。

#### 【0015】

図 2 は、拡散層厚み (%) と締めつけ圧力との関係を示すグラフである。

図 2 において拡散層厚みが 100% は、締めつけ圧力をかけていない状態でのガス拡散層の厚み  $D_1$  に対応し、図 2 に示すように締めつけ圧力をかけると締めつけ圧力の大きさに対応して拡散層厚みは徐々に低下する。a の曲線および a の曲線より上方の範囲は従来の燃料電池用電極の拡散層厚み (%) と締めつけ圧力との関係を示すものであり、例えば締めつけ圧力  $10 \text{ kgf/cm}^2$  において元の厚さの約 90% に達する。前記範囲では前記図 5 に示したように反応ガスの一部が凸部 20 間で挟持されたガス拡散層 5 を経て隣のガス流路 8 にショートカットしてしてしまう。

#### 【0016】

一方、b の曲線は本発明における拡散層厚み (%) と締めつけ圧力との関係を示すものであり、本発明においては所定の締めつけ圧力 (例えば  $10 \text{ kgf/cm}^2$ ) をかけて挟持前の厚さ  $D_1$  が挟持後に厚さ  $D_2$  が  $D_1 \times 0.9$  以下となるように締め付けて挟持する。

#### 【0017】

このようにすることにより凸部 20 間で挟持されたガス拡散層 4、5 はガス透過性が小さくなり、逆に締めつけ圧力がかからないかほとんどかからないガス流路 8 間のガス拡散層 4、5 はガス透過性が大きくなる。この差が大きいと反応ガ



スが凸部 20 間で挟持されたガス拡散層 4、5 を経て隣のガス流路 8 にショートカットして流れるのが抑制、防止され、反応ガスが均一に各ガス流路 8 内を流れる。

これによりガス流路 8 内に万一結露した水滴が溜っても反応ガスにより吹き飛ばすことができ、結露した水滴を良好に排出できる。

また、締め付け圧力は凸部 20 間のガス拡散層 4、5 にかかり最も強く圧縮されるため接触抵抗が低減する効果がある。

#### 【0018】

本発明で用いるガス拡散層 4 および 5 としては、特に限定されるものではないが、具体的には、例えば石油系、ポリアクリロニトリル系、セルロース系などのカーボン繊維を用いたカーボンペーパーや、カーボン織布、カーボン不織布および金属繊維からなる多孔質体などを含む導電性多孔性材料や、この導電性多孔性材料に撥水処理をした材料や、この導電性多孔性材料にカーボン粉末とポリテトラフルオロエチレン、パーフルオロカーボンスルホン酸、テトラフルオロエチレンーペルフルオロアルキルビニルエーテル共重合体、テトラフルオロエチレンーヘキサフルオロプロピレン共重合体、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリフッ化ビニリデン、ポリフッ化ビニルおよびテトラフルオロエチレンーエチレン共重合体などの撥水性充填剤からなる混合物を塗布した材料などを挙げることができる。

#### 【0019】

これらのガス拡散層の中でも、弾力性のあるカーボンペーパー、繊維の太さの細かいカーボン繊維を用いたカーボンペーパーあるいはポリテトラフルオロエチレンなどの前記撥水性充填剤の配合量を最適に制御したものなどは所定の締め付け圧力（例えば通常使用される  $10 \text{ kgf/cm}^2$  程度の締め付け圧力）により容易に元の厚さの 90% 以下になり、反応ガスのショートカットを抑制、防止できるので本発明において好ましく使用できる。

本発明においてはこのような特別のガス拡散層を使用することが好ましいが、通常のガス拡散層を使用し、締め付け圧力を通常の締め付け圧力より高くして、元の厚さの 90% 以下になるように締め付けることもできる。

## 【0020】

上記実施の形態の説明は、本発明を説明するためのものであって、特許請求の範囲に記載の発明を限定し、或は範囲を減縮するものではない。又、本発明の各部構成は上記実施の形態に限らず、特許請求の範囲に記載の技術的範囲内で種々の変形が可能である。

## 【0021】

## 【発明の効果】

本発明の請求項1記載の燃料電池用電極は、電解質膜の両面に燃料極側触媒層および空気極側触媒層を配置し、さらに燃料極側触媒層および空気極側触媒層の外面にそれぞれガス拡散層を配置し、さらにガス拡散層の外面に前記ガス拡散層に面して反応ガス流通用ガス流路を形成する複数の凹部と凸部を備えた一組みのセパレータを配置し、前記一組みのセパレータの前記凸部間で前記電解質膜と前記触媒層と前記ガス拡散層とを締め付けて挟持した燃料電池用電極において、

挟持する前の前記ガス拡散層の厚み $D_1$ が、挟持後に $D_1 \times 0.9 = D_2$ 以下となるように締め付けて挟持したことを特徴とするものであり、締めつけ圧力をかけて挟持後に $D_2$ が $D_1 \times 0.9$ 以下となるようにすることにより、反応ガスが凸部間で挟持されたガス拡散層を経て隣のガス流路にショートカットして流れるのを防止でき、電極面内において均一な反応を行わせて規定の電力が得られるようになり、かつ、ガス流路内に結露した水滴が万一溜っても反応ガスで吹き飛ばして良好に排出できるという顕著な効果を奏する。

## 【図面の簡単な説明】

## 【図1】

本発明の燃料電池用電極の部分拡大断面説明図である。

## 【図2】

拡散層厚み(%)と締めつけ圧力との関係を示すグラフである。

## 【図3】

従来の燃料電池の1形態である固体高分子形燃料電池の電極(単セル)の基本構成を示す分解断面図である。

## 【図4】

固体高分子形燃料電池スタックの基本構成を示す断面図である。

【図 5】

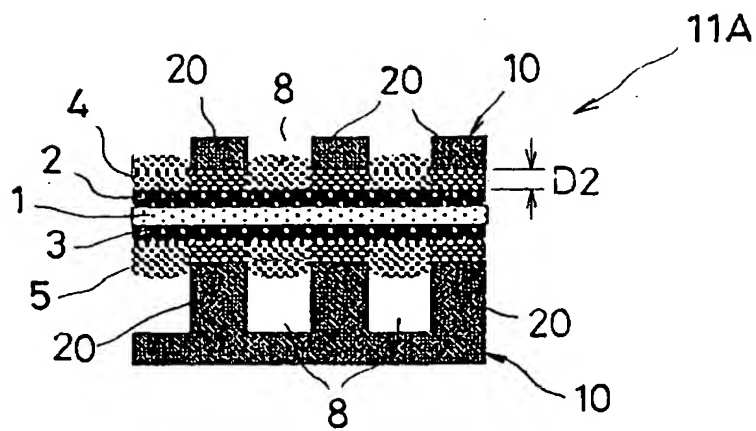
図 3、4 に示した燃料電池用電極の部分拡大断面説明図である。

【符号の説明】

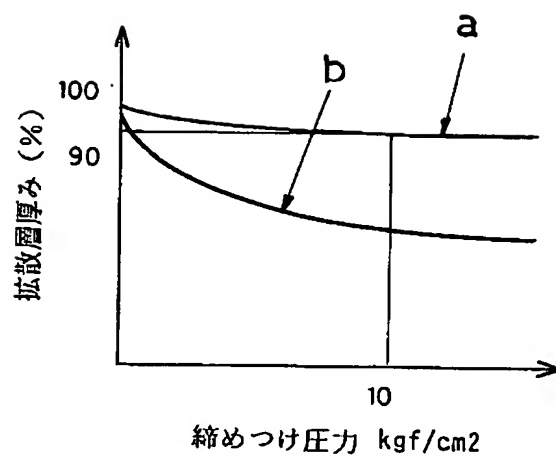
- 1 固体高分子電解質膜
- 2 空気極（カソード）側触媒層
- 3 燃料極（アノード）側触媒層
- 4 空気極側ガス拡散層
- 5 燃料極側ガス拡散層
- 6 空気極
- 7 燃料極
- 8 反応ガス流通用ガス流路
- 9 冷却水流路
- 10 セパレータ
- 11、11A 燃料電池用電極（燃料電池単セル）
- 20 凸部

【書類名】 図面

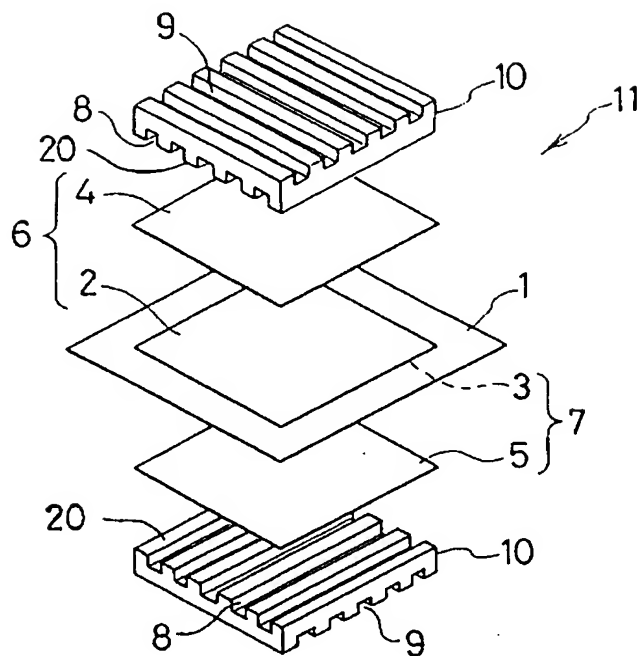
【図 1】



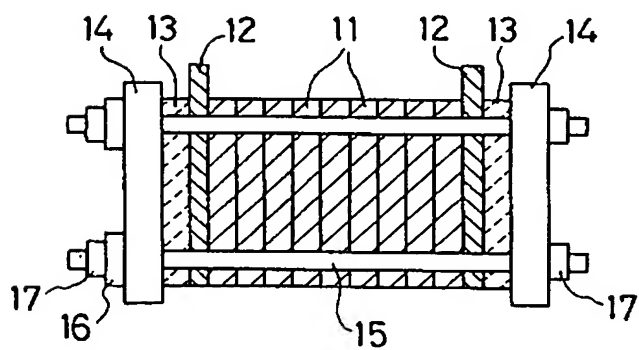
【図 2】



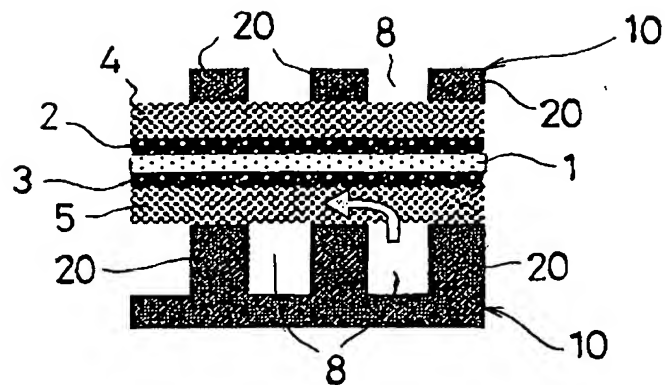
【図 3】



【図 4】



【図 5】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 セパレータのガス流路内を流れる反応ガスがガス拡散層を経て隣のガス流路にショートカットして流れるのを防止し、電極面内において均一な反応を行わせて規定の電力が得られる燃料電池用電極の提供。

【解決手段】 電解質膜 1 の両面に燃料極側触媒層 3 および空気極側触媒層 2 を配置し、その外面にそれぞれガス拡散層 4、5 を配置し、さらにその外面に前記触媒層 2、3 に面して反応ガス流通用ガス流路 8 を形成する複数の凹部と凸部 20 を備えた一組みのセパレータ 10 を配置し、前記一組みのセパレータ 10 の凸部 20 間で電解質膜 1 と触媒層 2、3 とガス拡散層 4、5 とを締め付けて挟持した燃料電池用電極 11A（燃料電池単セル）において、挟持する前の前記ガス拡散層の厚み  $D_1$  が、挟持後に  $D_1 \times 0.9 = D_2$  以下となるように締め付けて挟持する。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 2 - 3 4 6 2 9 8

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 1 8 8 9 ]

1. 変更年月日

1 9 9 3 年 1 0 月 2 0 日

[変更理由]

住所変更

住 所

大阪府守口市京阪本通 2 丁目 5 番 5 号

氏 名

三洋電機株式会社